

인라인 주입방식의 최초응집이 케이크 저항에 미치는 영향

Effect of cake resistance by first-aggregation of in-line injection system

김태영·박희경*

Taeyoung KIM · Heekyung PARK *

KAIST 건설 및 환경공학과

(2008년 2월 18일 접수; 2008년 4월 28일 채택)

Abstract

Cake resistance is influenced by floc size deposited on membrane surface. Enlarging floc size can reduce cake resistance. The small particles are enlarged by coagulation and flocculation process in conventional mixing tank at membrane filtration system. Fully-grown flocs for reducing the cake resistance, however, are ruptured while passing through a pump. In light of this fact, this study aims to experimentally look at the reaggregation phenomenon of mixing system. In addition, reaggregation phenomenon of mixing system is compared with first-aggregation of in-line injection system in which coagulant is injected just before a pump. These results suggest that first-aggregation of in-line injection system is better than reaggregation of mixing system for G-value above 3100sec⁻¹. Since G-value in pipe of actual membrane filtration system are usually larger than 3100sec⁻¹. The performance of in-line injection system is expected to be better than the conventional mixing tank system.

Key words : In-line injection system, First-aggregation, Cake resistance, Representative particle size.

주 제 어 : 인라인 주입 방식, 최초응집, 케이크 저항, 대표입경

1. 서론

막여과공정에서 케이크저항을 줄이기 위한 공정으로 응집공정이 반드시 필요하다. 이러한 응집공정으로 제시되고 있는 기존 방법으로 임펠러를 이용한 급속 및 완속혼화 공정이 현재 많은 막여과 공정에서 도입되고 있으며 응집공정의 최적조건을 찾기 위해서 많은 연구들이 진행되어 왔다. 하지만 임펠러를 가진 완속혼화 공정에서 크기가 충분히 커진 플

록일지라도 펌프를 통과한 이후에는 펌프의 강한 압력으로 인해서 플록들이 완전히 깨지게 된다(Kim et al., 2007; Kim and Park, 2007). 하지만 Kim과 Park (2007)의 연구 결과에 따르면 펌프를 통과한 이후 관내 유체의 흐름특성에 따라서 깨진 플록들이 재응집 되며 이러한 유체 특성은 속도경사 값인 G값으로 표현되어진다. 또한 관내 재응집(reaggregation) 특성은 펌프와 막모듈 입구전단까지의 관내 체류시간에 따라서 증가하지 않으며 5초 이내에 재응집되는 것으로 관찰되었다. 이러한 재응집 특성에서 관내 G값

* Corresponding author Tel: +82-42-869-3620, FAX: +82-42-869-3610, E-mail: hkpark@kaist.ac.kr (Park, H. K.)

Table 1. Governing Equations : Steady-State Expression for Limiting Flux Based on Shear-Induced Diffusion (Adapted from Stephenson et al., 2000).

Model	Equation	Reference
Leveque solution for shear-induced diffusion (based on $D_s = 0.03\gamma\alpha^2$)	$J_L = 0.807(\gamma D_s^2/L)^{1/3} \ln C_w/C$	Zydney and Colton (1986)
Similarity solution for shear-induced diffusion (based on $C_w \sim 0.6$ and $C_w(0.1$ by volume)	$J_L = 0.072\gamma(\alpha^4 C_w/CL)^{1/3}$	Davis and Sherwood (1990)
Model for shear-induced diffusion, $\phi_b < 0.2$	$J_L = 0.060(\tau_w/\mu)(\alpha^4(1-3.8\phi_b L)^{1/3})$	Davis and Sherwood (1990)
Model for shear-induced diffusion, is low	$J_L = 0.060(\tau_w/\mu)(\alpha^4/\phi_b L)^{1/3}$	Romero and Davis (1988)
Integral model for shear-induced diffusion from thick layers	$J_L = 1.31\eta(C)(\alpha^4 Q_{cr}(C)/CL)^{1/3}$	Romero and Davis (1988)

Note: γ =shear rate(sec⁻¹); α =particle radius(m); D =diffusion coefficient(l); C_w =wall concentration; C =concentration; L =membrane length (m); P_w =wall shear stress (N/m²); ϕ_b =particle volume fraction in the bulk (feed); $\eta(C)$ =dimensionless viscosity; and $Q_{cr}(C)$ =excess particle flux.

이 증가할수록 입자의 크기가 응집이전 크기에 근접하게 나타났다. 또한 혼화조내에서의 급속, 완속공정 이후 깨진 플록들 사이의 강도는 최초로 응집된 플록들 사이의 강도보다 작아지게 된다. 결국, 이러한 막여과에서 급속 및 완속혼화조내에서의 성장한 플록들이 펌프를 통과할 때 깨져버리며 다시 응집되더라도 플록강도가 처음보다 작으며 그 크기 또한 관내 G값이 커짐에 따라 재응집되는 입자들의 크기가 작아지는 현상을 보인다. 이러한 기존응집공정의 단점을 극복하기 위해서 펌프 이전 단계에서 응집제를 주입하여 펌프내에서 음전하를 띠고 있는 콜로이드 입자들을 전하중화시킨 이후 관내에서 유체흐름을 이용하여 입자들의 크기가 커지는 최초응집(first-aggregation)을 이용하는 것이 인라인 주입방식이다(Kim et al., 2007). 인라인 주입방식은 펌프에 의해서 플록들이 깨짐으로서 발생하는 플록강도의 약화 문제의 극복과 공정의 간편성 때문에 그 효율성이 앞으로 커질 것으로 기대된다.

하지만 인라인 주입방식 또한 관내 유체흐름특성에 따라 최초 응집된 입자들의 크기가 영향을 받게 되므로 관내 G값의 변화에 따라서 입자들의 크기가 어떻게 변화되는지 살펴보는 것이 중요하다. 동시에 완속혼화 공정 이후 펌프에서 깨진 플록들이 관내에서 G값의 변화에 따라서 재응집될 때와 같은 G값에서 비교하여 실제 급속-완속혼화 공정과 인라인 주입방식과의 입자크기의 형성특성과 막의 케이크 저항에 미치는 영향을 같은 유체 흐름 특성 조건에서 살펴보는 것이 중요하다.

본 연구에서는 관내 G값이 같을 경우 재응집되는 플록들의 크기와 인라인 주입방식에 의해서 형성되는 최초 응집된 플록들 사이의 크기를 비교하고 이렇게 형성된 플록들이 후단의 막여과 공정에 미치는 영향인자를 파악하여 효율적인 막여과 처리공정에서의 플렉스 향상 방법을 제시하도록 한다.

2. 이론적 배경

2.1. EDSD (Effective Diameter for Shear-induced Diffusion)

Crossflow조건에서 실제 막여과 장치에 공급되는 원수의 대부분은 다양한 입경분포와 크기를 가지고 있다(Kim and Park, 2005). 이러한 다양한 입경분포가 존재할 경우를 polydispersity라고하며 실험조건에서 단일한 입경만이 존재할 경우를 monodispersity라고 한다. Monodispersity 조건에서 limiting flux는 Table 1에서 보듯이 입자 반경의 4/3에 반비례한다(Zydney and Colton, 1986; Romero and Davis, 1988; Davis and Sherwood, 1990). 즉, Monodispersity 조건에서 케이크 저항값은 입자 반경의 4/3에 반비례한다. 이러한 관계식은 단일입경에서만 적용되는 것으로 polydispersity조건에서는 적용할 수 없다.

Kim과 Park(2005)은 polydispersity조건에서의 입자 크기와 케이크저항값과의 관계식을 표현하기 위해서 EDSD(Effective Diameter for Shear-induced Diffusion)라는 개념을 만들었다. EDSD는 더 작은 입자일수록 더 작은 diffusivity를 가지며 입자크기의 4/3에 반비례하여 케이크 저항값이 형성된다는 성질을 이용하여 식 (1)과 같이 유도되었다. Kim과 Park(2005)의 결과에서 대표입경인 EDSD와 케이크 저항값과의 상관성이 매우 높은 것으로 나타났다. 본 연구에서도 Crossflow조건에서 polydispersity 조건의 입자 분포를 대표입경으로 나타내기 위해서 EDSD를 사용하도록 한다.

$$\begin{aligned}
 EDSD &= \sum(PF_i \cdot d_{pi}) = \sum(P_i \cdot w_i \cdot d_{pi}) \\
 w_i &\propto Re_i \propto 1/d_{pi}^{4/3} \\
 w_i &= k/d_{pi}^{4/3} \\
 \sum PF_i &= \sum(w_i \cdot P_i) = k \cdot \sum(P/d_{pi}^{4/3}) = 1
 \end{aligned}
 \tag{1}$$

여기서, PF_i 는 입자지름이 d_{pi} 인 입자가 막파울링을 일으킬 수 있는 확률, P_i 는 입자들 수에 근거한 입도분포 비율(%), w_i 는 중량치, k 는 보정계수.

2.2. EDPD (Effective Diameter for Polydispersity condition in Dead-end filtration)

Dead-end 여과 조건에서 입자 크기가 커서 막의 공극사이로 들어갈 수 없을 때 입자들은 막표면 위에 축적되며 여과가 진행될수록 케이크층을 형성하게 된다. 케이크층이 비압축성일 때, 케이크의 공극률과 저항값은 막면에 가해지는 압력차에 영향을 받지 않는다고 가정 할 수 있다. 이 경우 케이크의 단위 두께 당 케이크 저항값(\hat{R}_c)은 Carman-Kozeny 식에 의해서 평가 될 수 있다.

$$\hat{R}_c = K' (1 - \epsilon_c)^2 S_c^2 / \epsilon_c^3 = K' (1 - \epsilon_c)^2 \left(\frac{3}{d}\right)^2 / \epsilon_c^3 \quad (2)$$

여기서, ϵ_c 는 케이크의 공극률, S_c 는 케이크층의 입자부피당 단위면적이며, d 입자의 지름으로 균일한 구형입자일 경우 단위면적 $S_c = 3/d$ 이고, 임의지점의 케이크 공극률은, $\epsilon_c \approx 0.4$, 상수 K' 는 5.0이 된다.

식(2)은 dead-end여과조건에서 '단일입자크기' 일 경우 케이크의 단위 두께 당 케이크 저항값(\hat{R}_c)이 입자지름의 2승에 반비례함을 나타낸다. 그러나 실제 막여과 장치에 공급되는 원수의 대부분은 다양한 입경분포도와 크기를 가지고 있다 (Kim and Park, 2005). 이러한 다양한 입경분포가 존재할 경우를 polydispersity라고 하며, 입경분포가 다양한 원수조건에서는 단일한 입경크기만을 적용한 Carman-Kozeny식을 사용하는 것은 부적합하다. 이러한 상황을 해결하기 위해서 본 연구에서는 Kim과 Park(2005)이 crossflow조건에서 제안한 EDS(D(Effective Diameter for Shear-induced Diffusion))의 식으로부터 polydispersity 조건에서의 입자크기에 따른 케이크 형성정도를 확률적인 관점에서 접근하여 작은 입자일수록 그 입자지름의 제곱에 반비례하여 케이크 저항을 유발하게 된다는 점을 감안하여 dead-end조건에서 새롭게 유도된 대표입경인 EDPD(Effective Diameter for Polydispersity condition in Dead-end filtration)를 개발하였다. 이 EDPD는 dead-end 여과조건에서 작은 입자일수록 더 조밀한 케이크층을 형성하는 성질을 나타낼 수 있는 성질을 가지고 있다. 다시 말해서, 원수 속에 포함된 입자 크기에 따라서 막에 파울링을 유발시킬 수 있는 확률(Probability of Fouling, PF_i)을 고려한 것이다. 이러한 EDPD는 아래와 같은 공식으로 표현될 수 있다.

$$\begin{aligned} EDPD &= \sum(PF_i \cdot d_{pi}) = \sum(P_i \cdot w_i \cdot d_{pi}) \\ w_i &\propto R_{ci} \propto 1/d_{pi}^2 \\ w_i &= k/d_{pi}^2 \\ \sum PF_i &= \sum(w_i \cdot P_i) = k \cdot \sum(P/d_{pi}^2) = 1 \end{aligned} \quad (3)$$

여기서, PF_i 는 입자지름이 d_{pi} 인 입자가 막파울링을 일으

킬 수 있는 확률, P_i 는 입자들 수에 근거한 입도분포 비율(%), w_i 는 중량치, k 는 보정계수

입도분석을 해석하는 과정에서 많은 연구들의 대부분은 입자크기를 입도분포 곡선으로 입자크기의 변화 경향을 나타내고 있다. 비록 이러한 입도분포 곡선이 입도분포의 경향을 확인하는데 유리하다 할지라도, 다양한 입경을 가지는 원수조건에서의 입자 크기와 케이크 저항사이의 정량적으로 표현하는 데는 어려움이 많다. 이러한 다양한 입경분포를 가지는 원수조건을 나타내기 위해서 유도된 EDPD는 dead-end 여과조건에서 케이크 저항을 반영하는데 적합할 것으로 판단된다. Kim과 Park (2007)의 논문에서 EDPD와 케이크 저항사이의 관계를 정량적으로 분석하여 EDPD의 유용성을 증명하였다.

2.3. 관내에서의 G값의 계산

Static mixer나 in-line mixer와 같은 관내 난류를 이용한 실험에서 관내 혼화강도를 측정하기 위해서 사용하는 개념이 주로 G값이다. Clark(1985)와 Graber(1994)는 이러한 G값의 경우 2차원적인 흐름에서 유도되었고, mixer의 크기나 형태가 다르게 적용되는 3차원적인 흐름특성을 가지는 경우에는 그 사용이 부적합하다고 지적하였지만 몇 십년 동안 G값이 쉽게 계산 된다는 장점 때문에 다양한 유형의 혼화강도를 표현하기 위해서 사용되어 왔다. 본 연구에서도 이러한 계산상의 이유로 펌프와 막모듈 입구까지의 관내에서의 혼화강도를 정량적으로 표현하기 위해서 G값을 사용하고자 한다.

관내에서의 G값을 이용하기 위해서는 기존 연구자들의 경우 관내에서 마찰에 의해서 발생하는 압력손실을 계산하여 G값을 정량적으로 표현하였다 (Godfrey and Amirtharajah, 1991; Latimer and Amirtharajah, 1998; Jones et al., 2002). 처음, Godfrey와 Amirtharajah (1991)는 in-line mixer의 경우에서 마찰계수(friction factor), Reynolds수, 압력손실을 항으로 하여 아래와 같은 식을 유도하였다.

$$f = \frac{D \Delta p}{2L \rho v_a^2} = \frac{\mu \Delta p}{2L \rho v_a^2} \quad (4)$$

여기서, f 는 마찰계수, D 는 관의 지름(m), Δp 는 관을 통과하면서 발생하는 압력손실($kg \cdot m^{-1} s^{-2}$), L 은 관의 길이(m), ρ 는 물의 밀도($kg \cdot m^{-3}$), μ 는 물의 동점성 계수($kg \cdot m^{-1} s^{-1}$), v_a 는 평균 유속($m \cdot s^{-1}$)

두 번째로, 관내에서 압력손실과 G값의 관계를 아래와 같은 공식으로 표현할 수 있다.

$$G = \sqrt{\frac{P}{\mu V}} = \sqrt{\frac{Q \Delta p}{\mu V}} \quad (5)$$

여기서, P 는 관내에서 분산되는 에너지($kg \cdot m^2 s^{-3}$), V 는 관내에서의 유체의 부피(m^3), Q 는 유량($m^3 \cdot s^{-1}$), Δp 는 관을 통과하면서 발생하는 압력손실($kg \cdot m^{-1} s^{-2}$)

이러한 관내 압력손실은 물의 비중(γ)과 관내 수두손실(h_L)의 곱으로 표현할 수 있으며 관내 수두손실은 아래와 같이 Darcy-Weisbach 식으로 표현할 수 있다.

$$h_L = f \frac{L}{D} \frac{v^2}{2g} \quad (6)$$

마지막으로 관내 혼화강도를 표현하기 위해서 관경, 동점성계수, 평균 유속, 마찰계수로 이루어진 식을 유도하는 과정은 아래와 같다.

$$G = \sqrt{\frac{P}{\mu V}} = \sqrt{\frac{Q \Delta p}{\mu V}} = \sqrt{\frac{Q r h_L \nu_a}{\mu Q L}} = \sqrt{\frac{r h_L \nu_a}{\mu L}} = \sqrt{\frac{\rho g h_L \nu_a}{\mu L}} = \sqrt{\frac{g h_L \nu_a}{2 v D}} \quad (7)$$

($\because P = Q \times \Delta p; \Delta p = \gamma \times h_L; \gamma = \rho \times g; v = \mu / \rho$)

$$G = \sqrt{\frac{f v_a^3}{2 v D}} = \sqrt{\frac{f v_a^2}{2 D^2}} \cdot (Re)^{1/2} = \left(\frac{Re \cdot f}{2}\right)^{1/2} \cdot \frac{v_a}{D}$$

with $f = \frac{64}{Re} \quad (Re < 2,000), \frac{1}{f} = 2 \log(Re \sqrt{f}) - 0.8 \quad (Re > 3,000)$

G 값이 가지는 실제적 의미는 G 값이 클수록 관내를 통과하는 유체의 난류에너지가 크며, 이는 관경과 관을 통과하는 유량에 따라 그 값을 변화시킬 수 있다는 것을 의미하게 된다.

3. 실험 재료 및 방법

Amicon cell을 사용하여 dead-end 여과조건을 형성하였고, 사용한 막은 사용한 막은 MWCO (Molecular Weight Cut Off) 30,000Da인 폴리스ulfon재질의 disc형의 UF막이고, 유효면적은 이다. Crossflow조건을 위해서는 폴리스ulfon재질의 관형막 (SKM-103 model, SK화학)을 사용하였다. 막의 공극은 0.01~0.1 μ m의 분포를 이루고 있으며, 유효면적은 600cm²이다. 막의 길이는 36cm이고 내부 지름은 0.8mm이다. 입자성 물질은 Sigma-Aldrich에서 직경이 1 \pm 0.04 μ m인 균일한 latex입자를 사용하였다.

응집을 통해서 입자들 사이의 인력이 증가하게 되어 입자들의 크기가 커지게 된다. 이러한 응집의 메카니즘 중에서 charge neutralization은 pH 4.5이하의 조건에서 음전하로 대전된 콜로이드가 응집에의 다가 양이온의 투입으로 표면전하가 0에 가깝게 되므로 입자들 사이의 입자들 사이의 반발력이 감소하여 입자들의 크기가 커지는 응집메카니즘이며, sweep flocculation은 용액의 pH가 6~8 사이 일때 응집제

의 용해시에 생성되는 침전성 물질(Al(OH)₃)이 콜로이드 입자들과 서로 결합하여 입자들 사이의 강도를 높여 플록을 형성하는 응집 메카니즘이다.

본 연구에서는 용액의 pH를 4.5로 조정하여 charge neutralization의 응집조건을 형성하였다. 이러한 pH조건은 sweep flocculation조건보다 많은 양이온들이 수중에 존재하여 입자들의 재응집에 유리한 조건을 형성하게 된다 (Yukselen and Gregory, 2004; Kim et al., 2007).

2가지 유형의 실험이 진행되는데, 첫 번째 유형은 완속혼화 공정을 거치고 난 이후에 펌프를 통과할 때 깨진 플록들이 관내에서 재응집될 때 같은 G 값 조건에서 응집제가 펌프이전 단계에서 주입되고 난 이후에 관내에서 최초응집되는 인라인 주입방식과의 입자크기의 비교 실험이며, 두 번째 유형은 이렇게 재응집과 최초응집된 입자들이 dead-end 조건과 crossflow 조건에서 막여과 저항에 미치는 영향을 파악하는 실험이다.

이런 실험이 진행될 때, 급속-완속혼화방식의 응집을 위해서 70L의 조에 응집제로는 Junsei chemical의 Al₂(SO₄)₃·14H₂O로 응집제의 주입량은 5mg/l을 주입하였다. 응집제 주입량은 ZetaPlus(Brookshaven) 측정 장비에 의해서 응집 후 입자들의 제타포텐셜이 0에 가까운 지점을 측정하여 결정되었다. 인라인 주입방식에서도 같은 응집제 주입량을 사용했다. 인라인 주입방식에서는 펌프 내에서 coagulation이 일어나게 되며 관을 통과하면서 입자들의 충돌로 인해 최초 응집(first-aggregation)이 일어나게 된다.

입자들의 크기를 측정하기 위해서 4개의 지점에서 시료를 채취하였다. Fig. 1(a)에서 시료 채취지점이 나타나 있으며

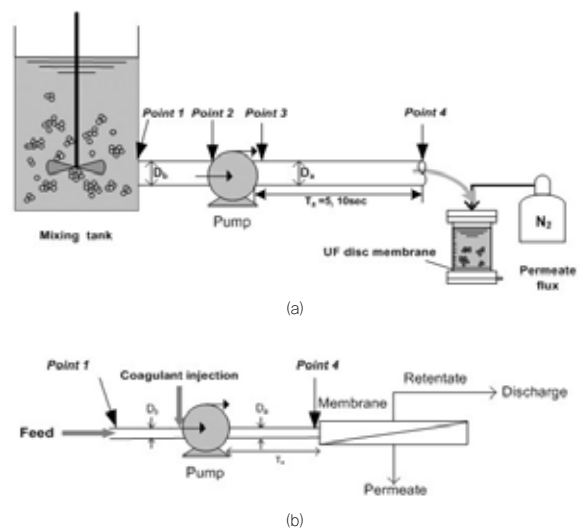


Fig. 1. Schematics of experimental setups (a) dead-end filtration with mixing tank; (b) crossflow filtration with in-line injection (D_a =diameter of pipe after pump; D_b =diameter of pipe before pump).

point 1에서 혼화조를 빠져 나오는 입구부분에서 설치된 밸브에서 시료를 채취하고, point 2에서는 펌프 바로 이전, point 3에서는 펌프를 통과한 바로 직후, point 4에서는 막에 공급되는 입구에서 시료를 채취하였다. 인라인 방식에서는 Fig. 1(b)와 같이 point 1과 4에서만 입자크기를 관찰하였다. 입자크기분석은 Sympatec(Germany)을 사용하여 측정하였다. 입도분석에서 가능한 시료채취 당시의 입자크기를 정확하게 분석하기 위해서 본 연구에서는 입도분석기의 렌즈사이로 직접 채취된 시료를 주입하여 입도분석을 실시하였다. 이러한 이유는 입도분석기의 경우 렌즈사이로 시료를 공급하기 위해서 micro-pump를 쓸 경우가 많은데 이 경우 펌프의 흡입과정에서 기존에 형성된 플록들이 깨지거나 그 크기가 변할 수 있기 때문이다.

Fig. 1에서 사용한 파이프는 polyurethane재질로 그 직경이 4, 5mm이며 관내 유속은 500~1050ml/min의 범위에서 실험하였다. 이런 관경과 유속이 변화는 관내 G값 및 Reynolds값의 변화에 직접적인 영향을 미치게 된다. 파이프 내에서의 유체 체류시간은 5초로 고정하여 실험하였다. 이러한 이유는 Kim과 Park (2007)의 연구결과에서 관내 체류시간이 5초에서 10초로 바뀌더라도 난류조건에서는 재응집되는 입자들의 크기가 큰 차이가 없기 때문이다.

Dead-end 조건에서의 실험을 위해서 amicon cell안의 TMP는 1.5atm으로 유지하며 운전하였고 flux는 일정시간 동안 투과된 유량을 이용하여 측정되었다. Crossflow조건을 위해서 유량은 850에서 1050ml/min으로 운전하였으며 TMP의 범위는 $3.25 \sim 4.03 \times 10^5 \text{N/m}^2$ 로 나타났다. flux와 TMP로부터 식(8)을 이용하여 케이크 저항값(R_c)을 측정하였다.

$$R_c = \frac{TMP}{\mu J} - R_m \quad (8)$$

여기서, R_m 은 막저항($1.13 \times 10^{12} \text{m}^{-1}$)이며 이 값은 초순수로 측정하여 계산되었고, J 은 투과플럭스로 25°C에서 진행하고, μ 는 동점성계수($8.91 \times 10^{-4} \text{N} \cdot \text{s/m}^2$ at 25°C)

4. 결과 및 고찰

4.1. 관내 입자크기에 대한 재응집과 최초응집의 영향

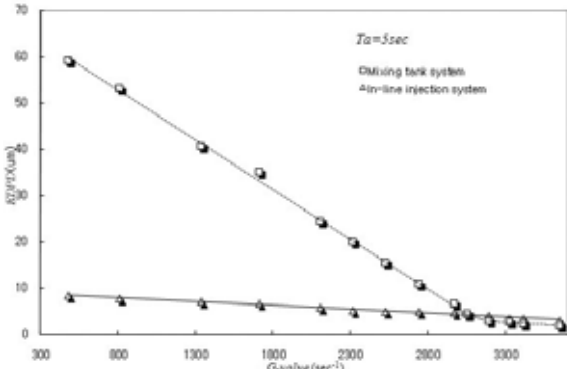
Kim 등(2007)은 crossflow조건에서 혼화조내에서의 급속-완속혼화조건을 가진 케이크저항값에 비해서 응집제를 펌프이전에 주입하는 인라인 주입방식이 더 작은 케이크 저항값을 가진다고 하였다. 급속-완속혼화를 통해서 크기가 커진 플록들은 펌프를 통과하면서 플록들이 완전히 깨지고 난 다음에 펌프와 막모듈 입구전단까지 이어진 파이프 내에서 재응집 되게 된다. 재응집을 통해 형성된 입자들 사이의 강도는 인라인 주입방식을 통해서 최초응집 된 입자들 사이의 강도보다 작아지게 되므로 인라인 주입방식을 통해서 최초응집 된 입자들이 같은 유체흐름에서 더 큰 입경을 가지게 된다고 하였다.

Kim과 Park (2007)은 연구에서 관내 G값이 재응집 되는 입자들의 크기에 영향을 미치게 되며 재응집되는 유형은 Reynolds값에 영향을 받게 된다고 하였다. Reynolds값에 따라서 층류와 난류 조건에 따라서 재응집 되는 입자들의 크기가 다르게 나타나며 G값이 증가할수록 거의 선형적으로 재응집되는 입자들의 크기가 작아졌다. 여기서 주목할 점은 관내 G값의 변화에 따라서 재응집되는 입자들의 크기와 최초응집되는 입자들의 크기를 비교하여 과연 어떠한 G값의 범위에서 인라인 주입방식과 재응집 방식과의 차이가 벌어지게 되는냐 하는 점이다.

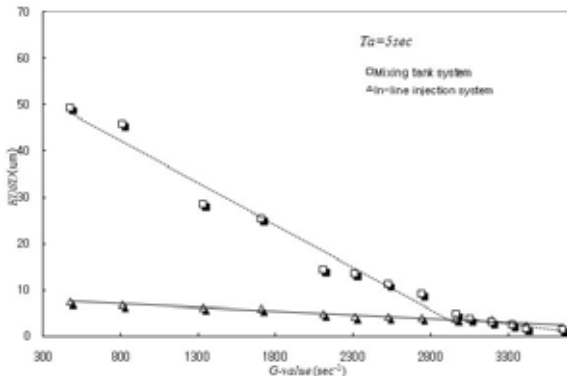
이것을 확인하기 위해서 본 연구에서는 재응집되는 입자들

Table 2. EDPD and EDS at point 4 of mixing tank and in-line injection systems.

Flow rate (mL/min)	D_a (mm)	Friction factor (f)	Re	G(sec ⁻¹)	EDPD(μm)			EDSD(μm)		
					Mixing tank	In-line injection	AP	Mixing Tank	In-line injection	AP
500	5	0.04681	2375	480	59.05	8.25	86.03	49.41	7.47	84.88
600	5	0.04422	2850	81	53.29	7.58	85.78	45.95	6.80	85.20
500	4	0.04367	2969	1335	40.57	7.02	82.70	28.44	6.21	78.16
600	4	0.04132	3592	1707	35.08	6.69	80.93	25.45	5.88	76.90
700	4	0.03947	4156	2104	24.44	5.72	76.60	14.45	4.91	66.02
750	4	0.03868	4453	2309	19.93	5.09	74.46	13.52	4.27	68.42
800	4	0.03796	4750	2521	15.49	4.98	67.83	11.35	4.16	63.35
850	4	0.03730	5047	2736	10.92	4.87	55.40	9.15	4.05	55.74
900	4	0.03684	5343	2962	6.54	4.67	28.59	4.98	3.86	22.49
920	4	0.03647	5462	3046	4.41	4.56	-3.40	3.91	3.82	2.30
950	4	0.03621	5640	3185	2.97	4.09	-37.71	3.14	3.58	-14.01
980	4	0.03582	5818	3319	2.74	3.51	-28.10	2.48	2.81	-13.31
1000	4	0.03562	5937	3411	2.24	3.43	-53.13	1.75	2.25	-28.57
1050	4	0.03513	6234	3645	1.82	2.98	-63.74	1.42	1.92	-35.21



(a) EDPD and G-value



(b) ESDS and G-value

Fig. 2. EDPD and ESDS at point 4 of mixing tank and in-line injection system.

의 크기와 최초응집 되는 입자들의 크기를 G값을 480~3645sec⁻²로 변화시키면서 입자들의 크기를 비교하였다. Table 2에서 보듯이 이 G값들의 범위에서 Reynolds값은 2375에서 6234까지 변화하였다. 모든 실험들은 난류조건에서 진행되었고, 각 경우마다 10번의 실험을 통해서 point 4 지점에서의 평균값을 제시하였다. 정량적인 분석을 위해서 재응집과 최초응집되는 시스템에서의 대표입경(EDSD, EDPD)을 Table 2과 Fig. 2에 나타냈으며 식 (9)와 같이 같은 G값에서 재응집되는 입자크기와 최초응집되는 입자크기의 차이를 정량적으로 나타내었다.

$$\text{Aggregation Percentage (AP)} = \frac{MS-IS}{MS} \times 100(\%) \quad (9)$$

여기서, MS는 point 4에서 재응집 되는 입자크기, IS는 point 4에서 최초응집 되는 입자크기

Fig. 2에서 보는 것과 같이 EDPD와 ESDS는 관내 난류 에너지를 나타내는 G값이 증가할수록 거의 선형적으로 감소하고 있는 것으로 나타났다. 게다가, Reynolds값이 5500 이고 G값이 3100sec⁻²이상부터 인라인 주입방식에 의해서 최초 응집되는 입자들의 크기가 적어도 0.33µm 이상 커지기 시작했다. 또한 재응집 되는 입자들과 최초 응집되는 크기의

차이를 정량적으로 표현하는 Aggregation Percentage(AP)값이 양의 값에서 음의 값으로 변하기 시작했다. 이것은 G값이 3100sec⁻²을 넘어서기 시작하면 재응집 되는 입자들의 강도보다 최초 응집되는 입자들 사이의 강도가 상대적으로 강하게 나타난다는 것을 의미하며 또한 인라인 주입방식이 더 유리한 조건에서 케이크 저항을 줄일 수 있음을 의미한다. 왜냐하면 실제 막여과 공정에서 사용되고 있는 펌프와 막모듈 입구사이의 관내부의 G값은 대부분 Reynolds값이 5500이상이며 G값 또한 3100sec⁻²이상에서 운전되고 있기 때문이다. 이것은 최초 응집되는 효과가 재응집되는 기작을 가진 급속-완속 혼합 방식의 응집공정보다 더 나은 공정임을 시사한다.

실제로 dead-end조건과 crossflow조건에서 재응집과 최초응집이 막의 케이크 저항에 미치는 영향을 알아보기 위해서 실험하였다. dead-end조건은 crossflow조건에서의 shear rate에 의한 bulk phase에서의 입자들의 충돌효과를 배제한 것이다. 교반을 하지 않은 amicon cell에서 투과 유량은 막표면에 직각으로 유출되며 케이크형성은 식 (2)에서와 같이 입자의 크기와 케이크의 공극에 의해서 결정되게 된다. Table 3과 Fig. 3(a)에서 보는 것과 같이 dead-end조건에서 관내 G값이 증가할수록 EDPD는 감소하며 steady state에서의 케이크 저항값은 증가하는 것으로 나타났다.

Table 3에서 보듯이 같은 G값의 crossflow 조건에서 실험을 진행하였다. 일반적으로 dead-end조건에서 비슷한 결과가 나타났다. ESDS는 G값이 증가할수록 감소하였으며 케이크 저항값이 증가하는 것으로 나타났다. 또한 G값이 3100sec⁻²이상에서 최초 응집된 ESDS값이 재응집된 입자 크기보다 더 큰 것으로 나타났다. 이러한 입자크기의 영향으로 G값이 3100sec⁻²이상에서 케이크 저항값이 더 작게 나타났다. dead-end와 crossflow를 모두 고려했을 때 G값이 3100sec⁻²이상에서 케이크 저항값이 모두 작게 나타나는 것은 재응집을 고려한 급속-혼화조건 보다 인라인 주입방식의 최초응집조건이 실제 막여과 공정에서 유리함을 나타낸다.

Kim(2003)의 연구결과에 의하면 polydispersity조건에서 케이크저항에 영향을 미치는 인자로서 입자들의 크기, 전단유속, 입자의 농도를 변화시키는 실험에서 입자의 크기를 조절하여 케이크 저항값을 줄이는 것이 가장 효과적인 방법임을 제시하였다. 이런 관계식을 다중회귀분석을 통해서 나타낸 것이 식 (10)과 같다.

$$Rc = A \cdot d_E^{k_1} \cdot \gamma_w^{k_2} \cdot C^{k_3} \quad (10)$$

여기서, d_E 는 ESDS, γ_w 는 전단유속, C는 입자농도

식(10)에서 k_1, k_2, k_3 은 각각 -1.744, -.0445, 0.202로 제시하였다. 입자들의 크기를 조금이라도 크게 만드는 것이

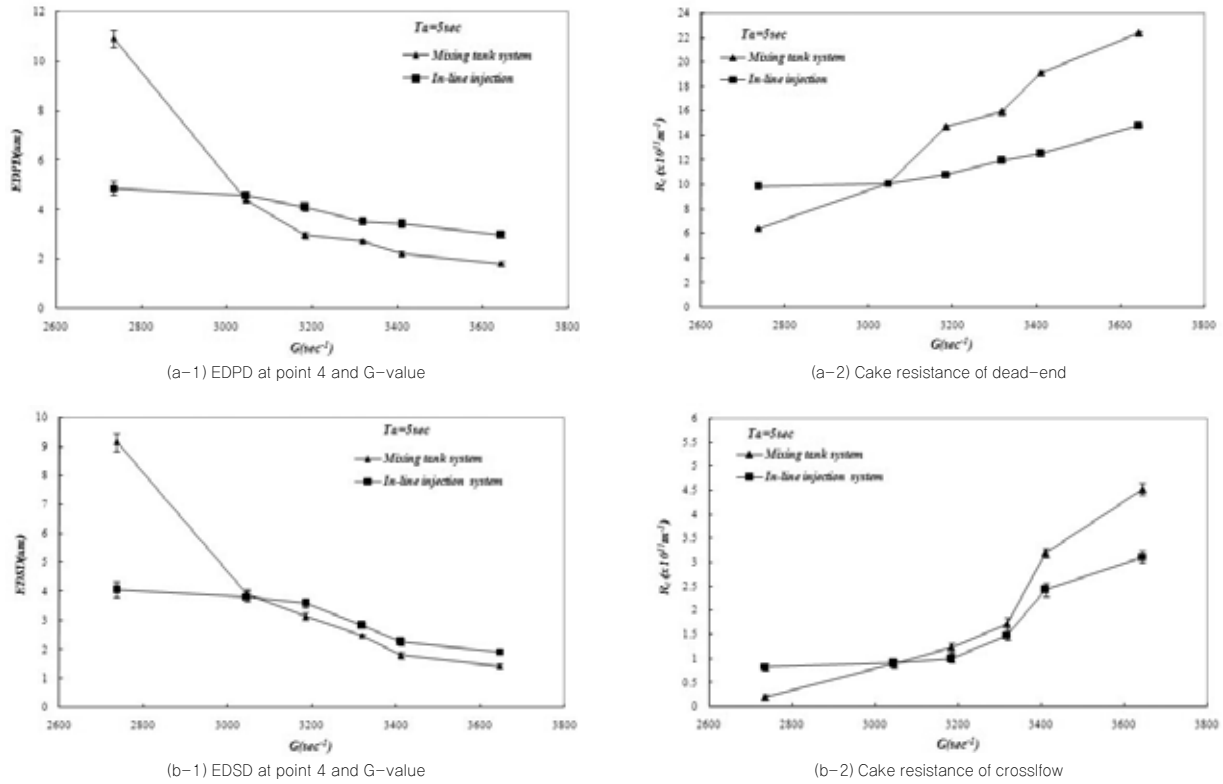


Fig. 3. EDPD and EDSD at point 4 and cake resistances of dead-end and crossflow filtrations.

crossflow 운전조건에서 가장 효율적으로 케이크 저장값을 줄일 수 있는 방법임을 고려할 때, 급속-완속 혼화 공정에서의 플록 재응집보다 인라인 주입방식에서의 최초 응집 방법이 실제 막여과 공정에서 효율적으로 적용될 수 있을 것으로 기대된다.

5. 결론

재응집과 최초응집이 막여과 공정에서 미치는 영향을 비교하여 다음과 같은 연구 결과를 얻었다.

- (1) 관내 수리화학적 특성을 나타내는 G값이 증가하면서

대표입경인 EDPD와 EDSD가 거의 선형적으로 감소하는 것으로 나타났다. 재응집되는 입자크기와 최초 응집되는 입자크기를 비교한 실험에서 G값이 3100sec⁻¹이상에서 최초 응집되는 입자크기가 더 크게 나타났다. 실제 막여과 공정에서 펌프와 막모듈 입구 전단까지의 관내 G값이 3100sec⁻¹이상으로 나타나므로 최초 응집되는 인라인 주입방식이 기존의 응집방식보다 효율적일 것으로 판단된다.

- (2) 관내 G값에 의해서 조절된 입자들의 크기가 직접 막여과 저항에 미치는 영향을 분석하기 위해서 dead-end 조건과 crossflow 조건으로 케이크 저장값을 분

Table 3. EDPD and EDSD at point 4 and cake resistances.

Condition		Mixing tank		In-line injection		Mixing tank		In-line injection	
G (sec ⁻¹)	Detention time (sec)	Dead-end filtration		Dead-end filtration		Crossflow filtration		Crossflow filtration	
		EDPD (μm)	R _c (×10 ¹¹ m ⁻¹)	EDPD (μm)	R _c (×10 ¹¹ m ⁻¹)	EDSD (μm)	R _c (×10 ¹¹ m ⁻¹)	EDSD (μm)	R _c (×10 ¹¹ m ⁻¹)
2376	5	10.92	6.42	4.87	9.82	9.15	0.19	4.05	0.83
3046	5	4.41	10.13	4.56	10.12	3.91	0.89	3.8	0.90
3185	5	2.97	14.72	4.09	10.84	3.14	1.22	3.5	80.99
3319	5	2.74	15.92	3.51	11.94	2.56	1.72	2.81	1.49
3411	5	2.24	19.15	3.43	12.53	1.75	3.19	2.25	2.43
3645	5	1.82	22.35	2.98	14.77	1.42	4.52	1.92	3.11

석하였다. 본 연구에서 관내 G값이 3100sec^{-1} 이상에서 재응집되는 조건보다 최초 응집되는 조건이 더 낮은 케이크 저항값을 가지는 것으로 나타났다.



사 사

본 연구는 2008년 교육인적자원부의 BK21연구 지원 및 한국학술진흥재단의 지원을 받아 수행된 연구임(KRF-2007-511-D00142).

참고문헌

1. Clark, M. M. (1985) Critique of camp and steins rms velocity gradient, *J. Environ. Eng.*, 116(6), pp 741-754.
2. David, R. H., and Sherwood, J. D. (1990) A similarity solution for steady-state crossflow microfiltration, *Chem. Eng. Sci.*, 45, pp. 3203-309.
3. Gofrey, J. C., Amirtharajah and Clark, M. M. (1991) *Mixing in coagulation and flocculation*, AWWARF, Denver.
4. Graber, S. D. (1994) A critical review of the use of the G-value (RMS velocity gradient) in environmental engineering, *Dev. Theor. Appl. Mech.*, 17, pp. 533-556.
5. Kim, S. (2003) *Charateristics and control of cake formation in crossflow microfiltration at polydisperse condition*, Ph. D. thesis, Dept. of Civil and Environmental Engg. KAIST.
6. Kim, S., and Park, H. (2005) Effective diameter for shear-induced diffusion for characterizing cake formation in crossflow microfiltration at polydisperse conditions, *J. Environ. Eng.*, 131(6), pp. 865-873.
7. Kim, S. Park, N. S., Kim, T. Y., and Park, H., (2007) Reaggregation of flocs in coagulation-cross-flow microfiltration, *J. Environ. Eng.*, 133(5), pp. 507-514.
8. Kim T. Y. and Park H. K. (2007) Reduction of cake resistance by floc reaggregation in a Membrane-Feed-Pipe, *J. Kor. Soc. Wat. and Wastewater*, 21(6), pp 717-726.
9. Latimer, R. J., Amirtharajah, A., (1998) Pilot scale comparison of static mixers and backmix reactors for coagulation, *AWWA Annual Conference*, pp. 705-740.
10. Romero, C. A., and Davis, R. H. (1998) Global model for crossflow microfiltration based on hydrodynamic particle diffusion, *J. Membrane Sci.*, 39, pp. 157-185.
11. Stephenson, T., Judd, S., Jefferson, B., and Brindle, K. (2000) *Membrane bioreactors for wastewater treatment*, IWA publishing, London.
12. Yukselen M. A., Gregory J. (2004) The effect of rapid mixing on the break-up and re-formation of flocs, *J. Chemi. Technol. Biotechnol.*, 79, pp. 782-788.
13. Zydney, A. L., and Colton, C. K. (1986) A concentration polarization model for the filtrate flux in cross-flow microfiltration of particulate suspensions, *Chem. Eng. Commun.*, 41, pp. 1-21.